

(19)



JAPANESE PATENT OFFICE

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11) Publication number: **56008454 A**

(43) Date of publication of application: **28 . 01 . 81**

(51) Int. Cl

**C08L101/00**

**C08L 97/02**

(21) Application number: **55041180**

(71) Applicant: **MIKUNI SEISAKUSHO:KK**

(22) Date of filing: **01 . 04 . 80**

(72) Inventor: **NAKAJIMA YOSHIKAZU**

(30) Priority: **03 . 07 . 79 CA 79 330990**

**(54) COMPOSITE MATERIAL COMPOSITION  
UTILIZING WASTEPAPER AND PRODUCTION  
THEREOF**

**(57) Abstract:**

**PURPOSE:** To produce titled compsn. which excels in mechanical strength and is suitable for use as a material for automotive parts, by a method wherein a granulated wastepaper and a thermoplastic resin are kneaded by utilizing frictional heat generated during mixing, and then the kneaded mixt. is granulated.

**CONSTITUTION:** A wastepaper (e.g. an old newspaper, a corrugated board) having a water content of 10W15% is granulated to a size of not more than 30mm in length.

100pts.wt. of the granulated wastepaper, 70W150pts.wt. of a thermoplastic resin such as PE, or PVC, not more than 20pts.wt. of a synthetic or natural rubber and not more than 25pts.wt. of an inorg. filler such as talc, or  $\text{CaCO}_3$  are introduced into a mixer which is then stirred at a high speed. The water content of the wastepaper is reduced to 0.3W1.0% by frictional heat generated during mixing. The stirring at a high speed is continued to beat the wastepaper in the molten thermoplastic resin and at the same time to knead the mixt. Then the kneaded mixt. is granulated by using a known granulator.

**COPYRIGHT:** (C)1981,JPO&Japio

## ⑫特許公報(B2) 昭57-43575

⑬Int.Cl.<sup>3</sup>  
C 08 L 101/00  
//(C 08 L 101/00  
97/02)

識別記号 庁内整理番号  
6911-4J

⑭⑮公告 昭和57年(1982)9月16日  
発明の数 2

(全6頁)

1

## ⑯故紙利用の複合材組成物及びその製造方法

⑰特 願 昭55-41180  
⑱出 願 昭55(1980)4月1日  
⑲公 開 昭56-8454  
⑳昭56(1981)1月28日

優先権主張 ㉑1979年7月3日㉒カナダ(CA)  
㉓330990

㉔発明者 中島義和  
武藏野市境4丁目5番24号  
㉕出願人 株式会社三国製作所  
武藏村山市三ツ木2435番地  
㉖代理人 弁理士 井上重三 外1名

## ㉗引用文献

特公 昭46-41106(JP,B1)  
特開 昭48-51935(JP,A)  
特開 昭49-27535(JP,A)  
プラスチック配合剤—基礎と応用 昭46. 7.  
10 第97頁 株式会社大成社発行  
便覧ゴム・プラスチック配合薬品 昭49. 10. 15 第256頁 ラバーダイジエスト社発行

## ㉘特許請求の範囲

1 熱可塑性樹脂約70乃至150重量部と、合成ゴムまたは天然ゴムを約20重量部と、滑剤としてステアリン酸を混合した材料を溶融させ、この溶融した液相内で切断された故紙100重量部を混練し、この故紙を溶融液相内で叩解すると共に、叩解された故紙に溶融液を含浸せしめて形成した故紙利用の複合材組成物。

2 無機充填剤を約25重量部を限度として添加した特許請求の範囲第1項記載の故紙利用の複合材組成物。

3 故紙を切断機にて切断する工程と、この切断された故紙をミルにて粗砕片の大きさを3.0mm以下に粗砕する工程と、この故紙粗砕工程で粗砕化された故紙と熱可塑性樹脂または故紙と熱可塑性

2

樹脂と他の添加剤を予め予熱されたミキサー内部で高速度で攪拌して混合すると共に、この混合の際に発生する摩擦熱で故紙の水分を除去して乾燥させる混合及び乾燥工程と、この混合及び乾燥工程に引き続きミキサー内部で高速度で攪拌を行ない攪拌の際に発生する摩擦熱で熱可塑性樹脂及び添加剤を溶融させると同時に、この溶融液相中にて故紙を叩解し混練する溶融混練工程と、この溶融混練工程終了後にミキサーの攪拌速度を短時間中速度にして初期の造粒を行なう初期造粒工程と、この後に複合材組成物の造粒を行なう造粒工程と、から成る故紙利用の複合材組成物の製造方法。

## ㉙発明の詳細な説明

## ㉚(発明の技術分野)

この発明は故紙を予め前処理することなく粗砕して、熱可塑性樹脂と混練して得られる故紙利用の複合材組成物及びその製造方法に関するものである。

## ㉛(従来技術)

従来に於て自動車の内装部品用ボード材の材料としては、合成樹脂、無機充填剤を添加した合成樹脂、木粉を添加した合成樹脂及び故紙を再生使用した圧縮ボードなどが存在した。

また木粉を添加した合成樹脂に於ては、その物性中に引張強度、曲げ弾性率、曲げ強度、衝撃強度等の機械的強度が弱い欠点が存在した。これら合成樹脂及び木粉を添加した合成樹脂の物性の欠点を改善するものとしてタルク、炭酸カルシウム

等の無機充填剤を添加した合成樹脂に於ては、耐熱性、難燃性及び機械的強度は向上したが、成型加工時に生じる成形線収縮率は合成樹脂の成形線収縮率(1~2%)と近い成形線収縮率(0.8~1.5%)を具有している。その為に自動車の内装部品のフロントボードの様に長さが1000mmを越える成型部品に於ては寸法公差が大きく成り、複数の成型品を嵌合または組合させて使用するの

が困難である欠点が存在した。

さらに故紙を利用した圧縮ボードに於ては、空気中の水分を吸収するので含水率が変動すると共に、この含水率に応じて伸縮するので、そり、ねじれ等の不規則変形の原因になる欠点が存在した。また、この圧縮ボードでは合成樹脂に比較して成型加工時の曲げ加工、絞り加工に限界が生じ、複雑な形状をした成型品の成型加工ができない欠点が存在した。

さらにまた故紙を利用した圧縮ボードの製造方法に於ては、まず最初に故紙を水中に於て叩解し、次に叩解された故紙を抄造し、次に抄造された故紙を乾燥し、さらに乾燥された故紙を圧縮成型して製造を行なつてはいた。この故紙を叩解抄造、乾燥させて使用する圧縮ボードの製造方法では、故紙を叩解、抄造、乾燥を行なう為に大型の製造設備を用意しなければならず高額の設備費を必要とする欠点が存在した。さらに故紙を叩解、抄造する為に大量の工業用水を必要とする欠点が存在し、そして、この故紙の叩解、抄造に使用した工業用水の廃水に対し公害対策上の処理をしなければならないので廃水処理設備を必要とする欠点が存在した。

#### (発明の概要)

この発明は大量に発生する新聞紙、段ボール紙、厚紙ボード紙及び厚紙ボード紙の端材等の故紙を再使用してパルプ材の省資源化に寄与すると共に、石油誘導系樹脂の使用割合を減少させて石油資源の省資源化にも寄与する故紙利用の複合材組成物を提供することを目的とする。

また、主として自動車用の部品材に適する物性を具有した故紙利用の複合材組成物を提供することを目的とする。

さらに、この発明は合成樹脂の具有していた耐熱性及び難燃性に関する欠点を改善し、木粉を添加した合成樹脂の具有していた機械的強度に関する欠点を改善し、無機充填剤を添加した合成樹脂の成形線収縮率に関する欠点を改善した故紙利用の複合材組成物を提供することを目的とする。

さらにまた、この発明は故紙を再生利用した圧縮ボードの様に空気中の水分を吸収せず、その為に成形後にそり、ねじり等の変形を生ぜず、且つ合成樹脂と同程度の成型加工性を具有した故紙利用の複合材組成物を提供することを目的とする。

この目的を達成する為に、この発明は故紙100重量部に対し、熱可塑性樹脂約70乃至約150重量部を添加した故紙利用の複合材組成物として構成した。この故紙利用の複合材組成物には、複合材組成物を使用した成形品の用途に適した物性を具有させる為に、必要に応じて合成ゴムまたは天然ゴム、無機充填剤の添加剤を添加して構成することができる。

次に本発明は故紙を再生利用するに際して、大量の工業用水を使用して故紙を叩解、抄造した後に乾燥させる処理工程を必要としない故紙利用の複合材組成物の製造方法を提供することを目的とする。

また本発明は、故紙を利用して複合材組成物を15製造するに際して、故紙粗碎設備と、ミキサーと、造粒設備の極めて少ない設備にて、短かい時間に効率良く複合材組成物を製造することができる故紙利用の複合材組成物の製造方法を提供することを目的とする。

この目的を達成する為に、この発明は故紙を粗碎化する故紙粗碎工程と、この故紙粗碎工程で粗碎化された故紙と熱可塑性樹脂または故紙と熱可塑性樹脂と他の添加剤をミキサー内部で高速度で攪拌して混合と共に、この混合と同時に混合の際に発生する摩擦熱で故紙に含まれている水分を除去して乾燥させる混合及び乾燥工程と、この混合及び乾燥工程に引き続きミキサー内部で高速度にて攪拌を行ない攪拌の際に発生する摩擦熱で熱可塑性樹脂及び熱可塑性添加剤を溶融させる溶

融工程と、この溶融工程に引き続きミキサー内部にて高速度で攪拌を行ない溶融液相中に於て故紙を叩解し、この叩解された故紙に溶融液を含浸させる混練工程と、この混練工程で混練された複合材組成物を造粒する造粒工程と、から成る故紙利用の複合材組成物の製造方法として構成した。この製造方法には、製造をより短時間で効率良く行なう為にミキサーを予め予熱して製造する製造方法、混練工程と造粒工程の間に造核工程を設けて製造する製造方法及びその制御方法も必要に応じて採用することができる。

また本発明で構成された複合材組成物を使用した成形品の端材を破碎して、粉末状に形成して故紙、熱可塑性樹脂等に再添加した故紙利用の複合材組成物の製造方法としても構成することができ

る。

(発明の好ましい態様に関する詳細な説明)

この故紙利用の複合材組成物は、故紙100重量部に対し、熱可塑性樹脂約70～約150重量部を添加したものである。ここで使用する故紙は新聞紙、ダンボール紙、厚紙ボード紙、厚紙ボード紙の端材等であり、安価に大量に入手できる紙類であれば種類に制限はない。この故紙は洗浄、調質、乾燥等の処理は行なわないで使用することができる。その為に故紙にはサイズ剤、充填剤、顔料及びインキ剤などが混入、付着したままで使用され、また故紙は通常平衡状態にある場合には10～15%程度の水分を含有している。この故紙は大きいままで、熱可塑性樹脂等との混合、混練処理に時間を要するので、通常は30mm以下に粗砕化した故紙片を使用する。そして好ましくは故紙片の大きさは5mm程度で熱可塑性樹脂等と混合、混練処理して複合材組成物を形成するのが良い。

次にここで使用される熱可塑性樹脂は熱可塑性重合体であれば任意のものであり得る。例えばポリエチレン、ポリプロピレン、エチレン/プロピレン共重合体、ポリブテン、ポリ塩化ビニル、ポリ酢酸ビニル、ポリメタクリル酸エステル(特にメチルエステル)、ポリアクリル酸エステル、ポリスチレン等である。この熱可塑性樹脂は単独で使用することもできるが、複合材組成物を使用した成形品の用途に適した物性を具有させる為に複数の熱可塑性樹脂を混合して使用することができる。また熱可塑性樹脂の形状はペレット状であつても粉末状であつても使用することができる。そして熱可塑性樹脂の混合割合は故紙100重量部に対し、約70乃至約150重量部の範囲で任意に選択することができる。しかし、熱可塑性樹脂の混合量が約150重量部を越えると、複合材組成物の物性が熱可塑性樹脂単独の物性に近づき、耐熱性及び難燃性が低下するので好ましくない。反応に熱可塑性樹脂の混合量が約75重量部以下になると複合材組成物の物性に於て機械的強度中の衝撃強度が著しく低下するので好ましくない。その為に故紙と熱可塑性樹脂の混合割合は、故紙100重量部に対し熱可塑性樹脂100重量部とするのが好ましい。

この故紙利用の複合材組成物は、成形品に要求

される物性に応じて、添加剤を添加する変形例として構成することもできる。まず最初に故紙に対し、熱可塑性樹脂の混合量を減ずると、複合材組成物を使用した成形品の機械的強度中の衝撃強度が低下してくるが、この欠点を解消する為に、故紙100重量部に対し、熱可塑性樹脂約70乃至約150重量部及び合成ゴムまたは天然ゴムを20重量部を限度として添加した故紙利用の複合材組成物として構成することができる。この故紙利用の複合材組成物は衝撃強度の向上が著しい。ここで使用される合成ゴムはステレンゴム、ポリブタジエンゴム、ブチルゴム、ニトリルゴム、エチレン/プロピレンゴム、エチレン/酢酸ビニリゴム等の熱可塑性を具有した合成ゴムを任意に選択することができる。この合成ゴムまたは天然ゴムの形状はペレット状であつても粉末状であつても使用することができる。また予め熱可塑性樹脂とブレンドしてコンパウンド化して使用することができる。

次に故紙利用の複合材組成物の衝撃強度をさらに向上させる為に、故紙100重量部、熱可塑性樹脂約50乃至150重量部、合成ゴム、または天然ゴム20重量部以下に対し、無機充填剤を25重量部を限度として添加した故紙利用の複合材組成物として構成することができる。ここで無機充填剤としては、炭酸カルシウム、タルク、硫酸カルシウム、硫酸バリウム等を任意に選択して使用することができる。

また以上に述べた故紙利用の複合材組成物に於て、故紙と熱可塑性樹脂、故紙と熱可塑性樹脂及び他の添加剤との相溶性を向上させ、混練処理を容易にして成形品の物性を向上させる為に、滑剤としてステアリン酸を含有せしめることもできる。

以上に述べた故紙利用の複合材組成物の製造方法について以下に述べる。以下の説明に於て、原料とは故紙と熱可塑性樹脂、または故紙と熱可塑性樹脂及び他の添加剤を表わすものとする。熱可塑性物とは熱可塑性樹脂及び添加剤中の合成ゴム等の様に熱可塑性を具有したものを表わすものとする。

まず最初に故紙と熱可塑性樹脂または熱可塑性樹脂と他の添加剤とを効率良く混合、混練する為に故紙粗砕工程に於て、故紙を30mm以下の粗砕片にする。この故紙粗砕工程としては、種々の方

法が存在するが始めに故紙を切断機にて縦横方向に切断し、この切断された故紙片をミルにて粗碎することが効率良く粗碎片を得ることができる

ので好ましい。

次に故紙の粗碎片と熱可塑性樹脂または熱可塑性樹脂と他の添加剤をミキサー内部で混合する。この場合に熱可塑性樹脂と合成ゴムまたは天然ゴム、無機充填剤は、それぞれ単独のペレット状、粉末状でミキサー内部に投入しても良く、また熱可塑性樹脂と他の添加剤である合成ゴムまたは天然ゴム、無機充填剤をコンパウント化したものをミキサー内部に投入しても良い。ミキサー内部に原料が投入されると、この原料を高速度にて搅拌を行なう。ミキサー内部で高速度で搅拌が行なわると原料が混合されると共に、この混合の際に発生する摩擦熱で故紙の含水率を0.3乃至1.0%程度に低下させる様に乾燥を行なう。

次に引き続きミキサー内部で原料を高速度で搅拌し続けると、原料の混合の際に発生する摩擦熱でミキサー内部の温度が原料中の熱可塑性物を溶融可能な温度に達すると、熱可塑性物が溶融を開始する。この溶融開始温度まではミキサー内部の原料の摩擦熱で加熱するのであるが、外気温度から溶融開始温度まで原料の摩擦熱で加熱するのに時間が必要なので、予めミキサーを熱媒体を使用して故紙の乾燥に適する温度に予熱しておき、その後原料の摩擦熱でさらに故紙の乾燥及び熱可塑性物の溶融を行なうことが製造時間を短縮することができる

ので好ましい。

次に引き続きミキサー内部で原料を高速度で搅拌し続けると、溶融した熱可塑性物中で故紙が叩解を開始し、故紙と熱可塑性樹脂及び他の添加剤の混練が行なわれる。この混練は長時間行なうと原料の温度が上昇しすぎて、原料中の故紙等が熱分解を始めるので好ましくない。また叩解・混練の時間が長すぎると故紙の叩解が促進されすぎて、複合材組成物の成形品の機械的強度が低下するので、同じく好ましくない。

次に混練した原料を公知の造粒機を使用して造粒を行ない、故紙利用の複合材組成物を形成する。この複合材組成物を成型して利用する為には公知の成型手段が使用できる。例えばペント付きの射出成型機を使用して、通常の熱可塑性樹脂と同様に成型して利用することができる。

以上に述べた製造方法に於て、原料の混練から造粒工程に移行する際に、原料の混練終了時にミキサーの搅拌速度を短時間中速度にて、引き続き原料の搅拌を行ない、造粒初期の造核を行なわせると、次の造粒工程の所要時間を短縮できるので、効率の良い製造を行なうことができる。

また故紙利用の複合材組成物の成形品の端材を破碎して、粉末状に形成して、再度原料に混合して使用すれば原料の無駄を生じない故紙利用の複合材組成物の製造を行なうことができる。

次に故紙利用の複合材組成物及びその製造方法の実施例について説明する。

まず最初に製造方法の実施例について述べると、故紙として新聞紙を切断機にて7cm×7cmの正方形形状に切断する。この切断された新聞紙をターボミルにてさらに細分化する。この細分化した新聞紙片を5mm×5mmの網目を通過した新聞紙片のみを原料として4.2.5kgを使用する。熱可塑性樹脂としては、ポリプロピレンのエチレン共重合樹脂を3.4kg、高密度ポリエチレン樹脂を4.2.5kg、エチレン/プロピレンゴム4.2.5kg、及び抗酸化剤として2-6-ジ-*t*-ブチル-4-メチルフェノール(BHT)0.0.4kgを使用する(以下、原料という)。この原料を予め熱媒体で75~80℃に加熱されたミキサー内に投入する。そして原料をミキサー内で搅拌速度1060rmpの高速度で約25分間継続して搅拌を行なう。この場合にミキサー内部の温度は、始めは予熱温度の75~80℃であるが、この予熱温度よりも低い温度の原料が投入されるので、ミキサー内部の温度は一時的に低下する。しかし、ミキサー内部では高速度で原料が搅拌されているので、原料の混合の際に発生する摩擦熱で、搅拌開始より5分後にミキサー内部の温度上昇が始まる。この温度上昇も原料中の故紙の水分が飛散して、故紙の乾燥が充分に行なわれ、故紙の乾燥が略終了するまで急激に上昇することはない。原料中の故紙の乾燥が終りに近づくと、ミキサー内の温度は原料の混合の際の摩擦熱で、以前よりも急に上昇を開始する。そしてミキサー内部の温度が162℃に達すると原料中の熱可塑性物が溶融を開始する。この溶融開始まで搅拌開始から20分の時間を要した。この熱可塑性物の溶融によつて、原料の粘性は急激に上昇するので、搅拌によつて引き続き摩擦熱が生

じ熱可塑性物は完全に溶融する。この熱可塑性物が溶融すると故紙は溶融液相内で叩解される。この状態では叩解された故紙と熱可塑性物が糸を引きながら、さらに故紙の叩解を促進していくと共に、叩解された故紙に熱可塑性物を含浸させる混練が行なわれる。そして引き続き攪拌を長時間行なうと、ミキサー内部の温度が上昇しすぎて、原料中の故紙成分が炭化を開始する等の好ましくない状態を生じるので、ミキサーの攪拌開始後約25分経過した所で、次の造核工程に移行させた。<sup>10</sup>これまでの工程に於てミキサーのモーターの負荷電流は、原料の場合、乾燥段階では約200A程度であるが、原料中の熱可塑性物の溶融が開始すると増大を始め、溶融が進むに従つて原料の粘性が増大するので、ミキサーのモーターの負荷電流も増大する。そしてミキサーのモーターの負荷電流が約250Aに達した所で、次の造核工程移行の制御を行なつた。この造核工程移行の際の原料温度を計測した結果は180～190°Cであった。次の造核工程では前記と同じミキサーの攪拌速度を530 rpmに落して6～7分間の攪拌を行なつた。その結果、混練された原料は造粒初期の小粒群が形成され始めていた。そして、この造核工程終了時の原料の温度は225°Cに上昇していた。この造核工程の終了した原料を次の水冷にて約20°Cに冷却されたミキサー内に移し、攪拌速度100 rpmの低速度で15分間攪拌を行なうと直徑2～3mm程度の粒状に形成された原料が得られ、この粒状の温度は70°Cに低下していた。この造粒された原料をペント付きの射出成型機にて通常<sup>30</sup>

の熱可塑性樹脂と同様に所望に応じて成型して、成型品を完成する。

次に以上に述べた故紙利用の複合材組成物の成型品の物性を測定した結果を次の表に示す。実施例1は故紙4.25kg、ポリプロピレンのエチレン共重合樹脂3.4kg、高密度ポリエチレン樹脂4.25kg、エチレン/プロピレンゴム4.25kg、及びBHT0.04kgの原料で前述した製造方法の実施例にて製造した故紙利用の複合材組成物の成型品に関する物性である。実施例2は故紙2.55kg、ポリプロピレンのエチレン共重合樹脂4.08kg、高密度ポリエチレン樹脂5.1kg、エチレン/プロピレンゴム5.1kg、炭酸カルシウム8.5kg、ステアリン酸0.2kg、BHT0.05kgの原料で前述した製造方法の実施例にて製造した故紙利用の複合材組成物の成型品に関する物性である。比較例1はポリプロピレンのエチレン共重合樹脂8.0kg、高密度ポリエチレン樹脂1.0kg、エチレン/プロピレンゴム1.0kg、BHT0.1kgを混合した原料の成型品の物性である。すなわち実施例1の故紙を除いた組成物の物性を表わす。比較例2は熱可塑性樹脂3重量部、タルク2重量部の原料の成型品の物性である。すなわち無機充填材を添加した組成物の物性を表わす。比較例3は実施例1に於て、故紙の代わりに30メッシュ以下に粉碎した木粉を使用した組成物の成型品の物性を表わす。また、この表の燃焼速度の試験法は米国自動車安全規格(Feaeral Motor Vehicle Safety Standard)によつて示したものである。

II

12

試験項目(単位)	試験条件	試験方法 A S T M	実施例1	実施例2
比重		D-792	1.13	1.10
成形線収縮率(%)			0.28	0.35
引張強度(kg/cm <sup>2</sup> )		D-638	300	270
伸び(%)		D-638	4	6
曲げ弾性率(10 <sup>4</sup> × kg/cm <sup>2</sup> )		D-790	3.3	2.7
曲げ強度(kg/cm <sup>2</sup> )		D-790	420	400
硬度(R scale)		D-785	83	77
衝撃強度(kg-cm/cm <sup>2</sup> )	23℃ノツチ付	D-256	3.4	4.0
融点(℃)			163	163
熱変形温度(℃)	4.6kg/cm <sup>2</sup>	D-648 FMVSS	135	130
燃焼速度(mm/min)		302(初期)	33	41

試験項目(単位)	比較例1	比較例2	比較例3
比重	0.905	1.22	1.10
成形線収縮率(%)	1.0 ~ 2.0	0.8 ~ 1.2	0.8
引張強度(kg/cm <sup>2</sup> )	240	350	175
伸び(%)	340	10	4
曲げ弾性率(10 <sup>4</sup> × kg/cm <sup>2</sup> )	0.9	4.5	2.5
曲げ強度(kg/cm <sup>2</sup> )	240	450	282
硬度(S scale)	70	105	80
衝撃強度(kg-cm/cm <sup>2</sup> )	30	2.0	3.0
融点(℃)	162	174	163
熱変形温度(℃)	90	140	132
燃焼速度(mm/min)	60	54	45